



(12) BẢN MÔ TẢ SÁNG CHẾ THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN SÁNG CHẾ

(19) Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11) 
1-0021504

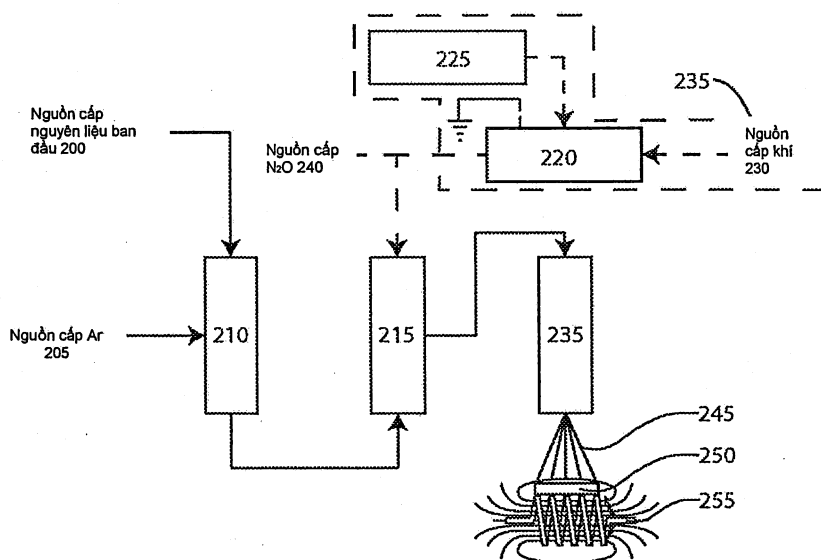
(51)⁷ C07C 2/02

(13) B

(21) 1-2015-01027 (22) 31.12.2012
(86) PCT/US2012/072335 31.12.2012 (87) WO2014/035456A2 06.03.2014
(30) 13/599,996 30.08.2012 US
(45) 26.08.2019 377 (43) 27.07.2015 328
(73) CARVER SCIENTIFIC, INC. (US)
8000 GSRI Avenue, Baton Rouge, LA 70820, United States of America
(72) David CARVER (US), Sean REYNOLDS (US)
(74) Công ty TNHH Lê & Lê (LE & LE)

(54) PHƯƠNG PHÁP SẢN XUẤT HỢP CHẤT XYCLOPHAN VÀ PHƯƠNG PHÁP SẢN XUẤT OLIGOME VÀ POLYME TỪ XYCLOPHAN

(57) Sáng chế đề cập đến quy trình và phương pháp được cải thiện để tạo ra chất trung gian xyclophan bền. Sáng chế đề cập đến phương pháp để sản xuất xyclophan được thế và không được thế. Các bộ phận của sáng chế là ống phản ứng nhiệt phân có thể được đun nóng bằng điện mà dòng chảy chứa nitơ oxit với hơi xylen trong một khí mang trợ tùy ý ở áp suất khí quyển được đưa vào đó. Khí thoát ra được ngưng tụ dẫn đến sự lắng đọng [2,2']paraxyclophan. Ngoài ra, sáng chế còn đề cập đến phương pháp để sản xuất oligome và polyme từ các hợp chất xyclophan.



Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

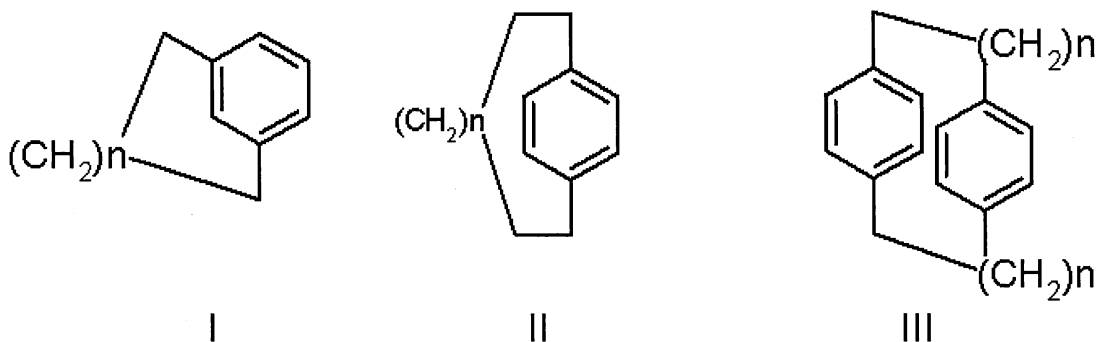
Sáng chế đề cập đến lĩnh vực tổng hợp xyclophan và phương pháp tổng hợp chúng trong các ứng dụng và tiện ích làm tiền chất polyme.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Xyclophan là một nhóm con của các cấu trúc hữu cơ rất nổi tiếng và đặc trưng. Một số đánh giá xuất sắc và các ấn phẩm được xuất bản bao gồm các phương pháp và các ứng dụng rất tốt.

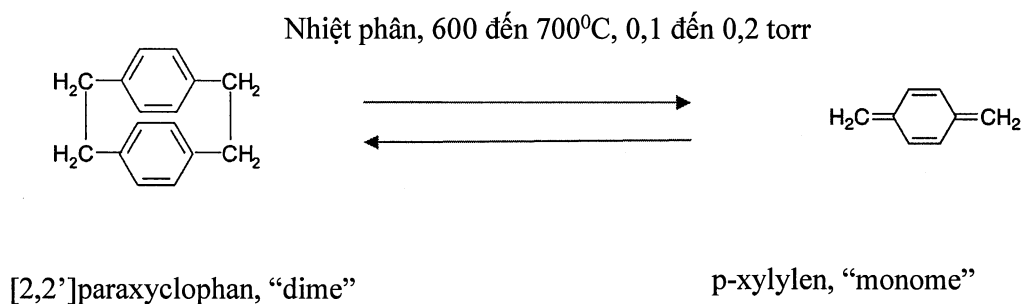
Nói ngắn gọn, xyclophan và các hợp chất benzoxycloit có liên quan khác là các phân tử hữu cơ có cấu trúc trong đó một mạch cacbon vòng hoặc mạch được thể bởi di tố được gắn vào hai hoặc nhiều vị trí của vòng thơm. Thuật ngữ xyclophan được sử dụng để mô tả các hợp chất có liên quan hoặc một cấu trúc phù hợp một cách rộng rãi với loại cấu trúc này.

Một trong những hợp chất xyclophan được nghiên cứu ở mức cao hơn là cấu trúc paraxyclophan. Trong một tập hợp các hợp chất xyclophan (như được chỉ ra trong các công thức cấu tạo $[n]$ metaxyclophan (I), $[n]$ paraxyclophan (II) và $[n,n']$ xyclophan dưới đây), có thể nhận thấy cấu trúc III là công thức cấu tạo chung cho paraxyclophan.



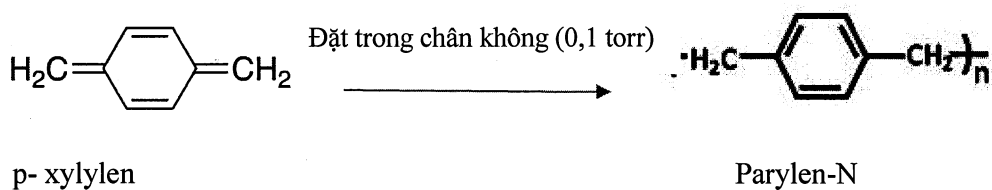
Trong mô hình thay thế này, lưu ý rằng số cạnh đơn giản nhất trong chuỗi này là khi $n=1$. Trong trường hợp này phân tử có tên là $[2,2']$ paraxyclophan. Phân tử này

và các dẫn xuất của nó là một nhóm quan trọng của các hợp chất có khả năng tạo thành hàng loạt các cấu trúc polyme. Vì lý do này, chúng là chất trung gian hữu cơ rất được mong muốn sử dụng làm tiền chất cho các lớp phủ bảo giác trong nhiều ứng dụng. Trong các ứng dụng này, phân tử được chỉ ra trong cấu trúc III ($n=1$) thường được đun nóng trong chân không để tạo ra một áp suất hơi đáng kể và để đẩy mạnh sự phân ly phân tử thành một chất trung gian phản ứng mạnh. Sự phân tách do nhiệt phân của [2,2']paraxyclophan tạo thành hai phân tử chất trung gian phản ứng p-xylylen (được thể hiện dưới đây).



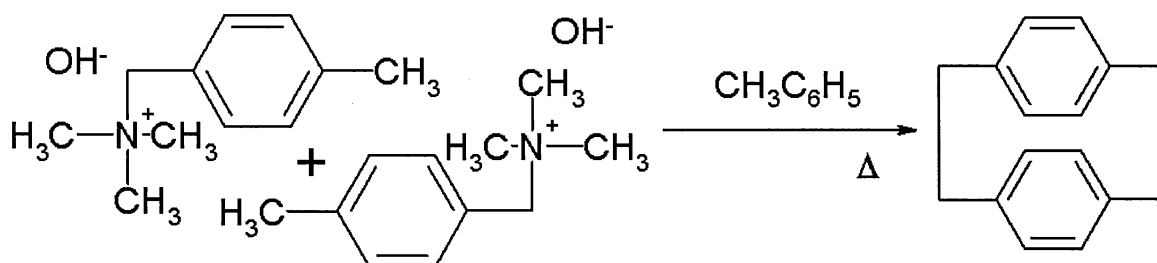
Ngoài ra, chất trung gian phản ứng p-xylylen có thể được tạo thành từ “dime” bằng cách sử dụng quy trình phóng điện nhiệt phân dưới áp suất không khí giảm. (tham khảo sáng chế Gorham US số #3342754). Quy trình này thường được gọi là “quy trình Gorham”.

Chất trung gian phản ứng theo cấu trúc đã được chỉ ra, p-xylylen là một loại chất trung gian tồn tại lâu dài có khả năng phản ứng để tạo thành một polyme rất được mong muốn. Đặc biệt polyme này là một lớp phủ bảo giác có khả năng bao phủ các bề mặt trong các lớp tương đối đồng nhất có sức kháng cao đối với các dung môi hóa học, khí, và sự tấn công sinh học. P-xylylen được đặt trong chân không lên trên một bề mặt đích cho lớp phủ bảo giác. Trên bề mặt, nó tái tạo thành một đơn vị lặp của poly(p-xylylen), còn được gọi là parylen. Trong trường hợp không có nhóm thế bổ sung trên vòng thơm hoặc các mạch phụ bên ngoài hydro, hợp chất polyme này được gọi là parylen-N.



Para-xylylen, là một chất trung gian phản ứng có giá trị, chủ yếu được tổng hợp thông qua quá trình nhiệt phân [2,2']paraxylophan. Do đó, sự tổng hợp [2,2']paraxyclophan là một chất trung gian bền tới hạn trong việc sử dụng p-xylylen và polyme parylen.

Việc tổng hợp [2,2']paraxyclophan thông qua con đường loại bỏ 1,6-Hofmann của các muối amoni bậc bốn.



Con đường này sẽ thông qua một muối amoni bậc bốn, mặc dù được sử dụng rộng rãi, nhưng gặp phải một số nhược điểm. Paraxyclophan thường được tạo ra với hiệu suất thấp sử dụng một quy trình bao gồm nhiều bước.

Ngoài ra, do hiệu suất thấp và một lượng lớn các sản phẩm phụ, việc tinh chế rộng rãi dime tạo thành là một quá trình bổ sung.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Cho đến nay, những hạn chế của quá trình (Gorham) trong chân không được biết đến đối với cả quá trình nhiệt phân dime và quá trình lắng đọng monome để tạo ra polyme đã làm tăng chi phí và hạn chế tiện ích của các ứng dụng polyme. Phương pháp cần thiết để làm giảm áp suất trong quá trình này và trong các ứng dụng của vật liệu là rất được mong muốn.

Một loạt sự thay thế đối với các nguyên tử hydro khác nhau và sự thay thế các dị tố ở vị trí các nguyên tử cacbon khác nhau trong các vòng và mạch được thực hiện. Điều rất được mong muốn là có một phương pháp có hiệu suất và hiệu quả để tạo ra các hợp chất này, kể cả hợp chất đã biết và chưa biết.

Do đó, cần phải có một phương pháp được cải thiện để tổng hợp dime trung gian bền của xylylen ([2,2']paraxyclophan) và các dẫn xuất có liên quan với hợp chất và cấu tạo chung đó. Ngoài ra, phương pháp chung để tạo thành xyclophan, và các hợp chất có liên quan với các nhóm thế khác nhau, thông qua một phương pháp có giá thành thấp là điều mong muốn. Hơn nữa cũng cần phải có một phương pháp được cải thiện để ứng dụng các monome xylylen (hoặc xylylen được thế) để tạo thành các lớp phủ và các sản phẩm polyme khác được dẫn xuất từ chất trung gian phản ứng này. Thậm chí được mong muốn hơn nữa là phương pháp để điều chỉnh các tính chất vật lý của polyme tạo thành đối với các ứng dụng bổ sung và sự mở rộng các phương pháp. Trong các thảo luận sau, ví dụ về p-xylylen sẽ được sử dụng để minh họa các phương pháp và quy trình được nêu ra. Phương pháp và quy trình có thể được mở rộng đến các phân tử tương tự khác bởi những chuyên gia trong lĩnh vực sáng chế này, và các phân tử này do đó sẽ không được đề cập đến một cách rõ ràng tường tận.

Do đó mục đích của sáng chế là làm giảm chi phí và các vấn đề được nêu trong các quy trình mô tả ở trên. Đầu tiên, phương pháp chung để tạo thành chất trung gian ví dụ p-xylylen đã được chỉ ra. Thứ hai, phương pháp tạo thành hợp chất hóa học trung gian bền chẳng hạn [2,2']paraxyclophan ("dime"), và các cấu trúc có liên quan, được chỉ ra đối với tiện ích trong các quá trình sản xuất hiện có. Thứ ba, sáng chế cũng chỉ ra một phương pháp trực tiếp và kinh tế cho việc ứng dụng monome vào mục đích mà không cần làm giảm áp suất, hoặc bất kỳ sự thay đổi áp suất nào đối với vấn đề này. Thứ tư, sáng chế sẽ nêu ra phương pháp mà theo đó các tính chất vật lý của các sản phẩm tạo thành của các phản ứng có thể được điều chỉnh và được kiểm soát đối với các mục đích cụ thể cho sự cải thiện các quá trình khác.

Vì các sản phẩm được tạo thành từ các phương pháp mà sau đó có thể được kiểm soát chặt chẽ về cả độ tinh khiết và sự kiểm soát về các tính chất vật lý, nhãn

hiệu Puralene™ được sử dụng cho các sản phẩm được tạo ra bởi các phương pháp mô tả trong tài liệu này. Độ lệch đáng kể dưới sự kiểm soát vận hành từ quy trình sản xuất parylen bình thường cho phép Puralene™ thể hiện các tính chất độc đáo và mới lạ không bình thường so với các sản phẩm parylen truyền thống.

Trong một phương án được ưu tiên của sáng chế, thiết bị và phương pháp để tạo ra chất trung gian phản ứng p-xylylen điển hình bằng cách sử dụng một ống phản ứng nhiệt phân được làm nóng trong đó mô tả một dòng chảy của khí trơ và nitơ oxit với hơi xylen trong một khí mang trơ ở áp suất khí quyển với các khí đi ra của sản phẩm phản ứng không bay hơi được ngưng tụ trên một bình.

Trong một phương án khác, phương pháp mà chất trung gian phản ứng hóa học được tạo thành hoặc từ nitơ oxit hoặc trực tiếp từ oxy cho phép tạo ra p-xylylen một cách chọn lọc trong pha khí ở áp suất khí quyển.

Trong một phương án khác, một thiết bị và phương pháp được mô tả để trộn các khí không phản ứng lạnh thành một dòng phản ứng nóng, dẫn đến việc làm nguội nhiệt độ cao của các khí phản ứng và do đó cải thiện khả năng ngưng tụ và bám dính vào các bề mặt của các chất trung gian phản ứng.

Trong một phương án khác, một thiết bị và phương pháp được mô tả để có phản ứng được tiến hành ở áp suất tăng và giá trị mở rộng ở đầu ra của ống phản ứng nhiệt phân được làm nóng để cung cấp sự làm lạnh mở rộng các khí nóng dưới những nhiệt độ nghịch đảo của chúng bằng hiệu ứng Joule-Thomson.

Trong một phương án khác, một thiết bị và phương pháp được mô tả sử dụng các nguyên liệu hữu cơ ban đầu với các phần tử thế bao gồm clo, diclo, metoxy, và metyl.

Trong một phương án khác, một thiết bị và phương pháp được mô tả cho việc sử dụng các nguyên liệu hữu cơ ban đầu với sự định hướng meta và/hoặc ortho của các phần tử thế trên vòng thơm.

Trong một phương án khác, một thiết bị và phương pháp được mô tả cho sự hình thành gốc tự do gián tiếp và/hoặc sự ion hóa nguyên liệu ban đầu nhờ phản ứng của nguyên liệu ban đầu (ví dụ p- xylen) bằng plasma và/hoặc nguồn nhiệt kết hợp.

Trong một phương án khác, sự thay thế nitơ cho argon và/hoặc các khí trơ chủ yếu khác được mô tả.

Sự điều chỉnh bổ sung các phương pháp nêu ở trên được đưa ra theo đó các tính chất vật lý của polyme tạo thành hoặc các sản phẩm phản ứng khác có thể được điều chỉnh bằng cách sử dụng từ trường và/hoặc điện trường để cung cấp các tính chất vật lý được kiểm soát.

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

Những điều nêu trên và các khía cạnh khác, các đối tượng, các đặc tính và các lợi thế của sáng chế sẽ được hiểu rõ hơn bằng cách tham khảo phần mô tả, yêu cầu bảo hộ sau đây, và các hình vẽ kèm theo, trong đó:

Fig. 1 là hình vẽ sơ đồ thiết bị cơ bản cho phản ứng sản xuất 1;

Fig. 2 là hình vẽ sơ đồ thiết bị cơ bản cho phản ứng sản xuất 2; và

Fig. 3 là biểu đồ tuyến tính mức độ cao để minh họa một phương pháp ví dụ để sản xuất vật liệu có hằng số điện môi tăng theo nguyên tắc của sáng chế.

Mô tả chi tiết sáng chế

Mô tả thiết bị cho phản ứng 1:

Trên Fig. 1, nguyên liệu ban đầu 1 được đưa vào buồng 4 bằng cách sử dụng một cơ chế bơm (không hiển thị) cho nguyên liệu lỏng hoặc rắn. Thông thường buồng 4 sẽ là một ống được làm nóng hoặc một thiết bị bay hơi khác để làm bay hơi nguyên liệu ban đầu 1. Nguyên liệu ban đầu 1 được làm bay hơi và được trộn với khí trơ 2 trong buồng 4. Khí trơ 2 có thể là khí bất kỳ trong nhóm các khí trơ, ví dụ nhưng không giới hạn bởi Argon. Hỗn hợp dễ bay hơi 3 tạo thành được chuyển vào buồng 6 và sau đó được trộn với nitơ oxit 5, để tạo ra hỗn hợp phản ứng hóa học 7. Buồng

phản ứng 8 thường được đun nóng đến xấp xỉ khoảng từ 450°C đến 800°C để kích hoạt phản ứng và cho phép sự bay hơi của các sản phẩm phản ứng đi ra là sản phẩm 9, lên trên bề mặt thu hồi 10.

Mô tả thiết bị cho phản ứng 2:

Trên Fig. 2, nguyên liệu ban đầu 1 được đưa vào buồng 4 bằng cách sử dụng một cơ chế bơm (không hiển thị) cho nguyên liệu lỏng hoặc rắn. Thông thường buồng 4 sẽ là một ống được làm nóng hoặc một thiết bị bay hơi khác để làm bay hơi nguyên liệu ban đầu 1. Nguyên liệu ban đầu 1 được làm bay hơi và được trộn với khí trơ 2 trong buồng 4. Khí trơ 2 có thể là khí bất kỳ trong nhóm các khí trơ, ví dụ nhưng không giới hạn bởi Argon. Hỗn hợp dễ bay hơi 3 tạo thành được chuyển vào buồng 6. Sự hình thành plasma thể khí 5, từ buồng 12, được kết nối bằng điện qua dây dẫn 14 đến máy phát điện plasma 13. Nguồn cấp khí 11 là một nguồn cấp khí thích hợp cho sự chuyển hóa thành plasma thể khí 5 bằng cách cảm ứng vào trong buồng 12 tạo thành plasma thể khí 5. Hỗn hợp dễ bay hơi 3 sau đó được trộn với plasma thể khí 5 trong buồng 6 để tạo ra hỗn hợp phản ứng hóa học 7 được chuyển vào buồng phản ứng 8. Buồng phản ứng 8 thường được đun nóng đến xấp xỉ khoảng từ 450°C đến 800°C để kích hoạt phản ứng và cho phép sự bay hơi của các sản phẩm phản ứng đi ra là sản phẩm 9, lên trên bề mặt thu hồi 10.

Mô tả thiết bị cho phản ứng 3:

Trên Fig. 1, nguyên liệu ban đầu 1 được đưa vào buồng 4 bằng cách sử dụng một cơ chế bơm (không hiển thị) cho nguyên liệu lỏng hoặc rắn. Thông thường buồng 4 sẽ là một ống được làm nóng hoặc một thiết bị bay hơi khác để làm bay hơi nguyên liệu ban đầu 1. Nguyên liệu ban đầu 1 được đun nóng trong buồng 4. Hỗn hợp dễ bay hơi 3 tạo thành được chuyển vào buồng 6 và sau đó được trộn với nitơ oxit 5, để tạo ra hỗn hợp phản ứng hóa học 7. Buồng phản ứng 8 thường được đun nóng đến xấp xỉ khoảng từ 450°C đến 800°C để kích hoạt phản ứng và cho phép sự bay hơi của các sản phẩm phản ứng đi ra là sản phẩm 9, lên trên bề mặt thu hồi 10.

Mô tả thiết bị cho phản ứng 4:

Trên Fig. 2, nguyên liệu ban đầu 1 được đưa vào buồng 4 bằng cách sử dụng một cơ chế bơm (không hiển thị) cho nguyên liệu lỏng hoặc rắn. Thông thường buồng 4 sẽ là một ống được làm nóng hoặc một thiết bị bay hơi khác để làm bay hơi nguyên liệu ban đầu 1. Nguyên liệu ban đầu 1 được làm bay hơi trong buồng 4. Hỗn hợp dễ bay hơi 3 tạo thành được chuyển vào buồng 6. Sự hình thành plasma thể khí 5, từ buồng 12, được kết nối bằng điện qua dây dẫn 14 đến máy phát điện plasma 13. Nguồn cấp khí 11 là một nguồn cấp khí thích hợp cho sự chuyển hóa thành plasma thể khí 5 bằng cách cảm ứng vào trong buồng 12 tạo thành plasma thể khí 5. Hỗn hợp dễ bay hơi 3 sau đó được trộn với plasma thể khí 5 trong buồng 6 để tạo ra hỗn hợp phản ứng hóa học 7 được chuyển vào buồng phản ứng 8. Buồng phản ứng 8 thường được đun nóng đến xấp xỉ khoảng từ 450°C đến 800°C để kích hoạt phản ứng và cho phép sự bay hơi của các sản phẩm phản ứng đi ra là sản phẩm 9, lên trên bề mặt thu hồi 10.

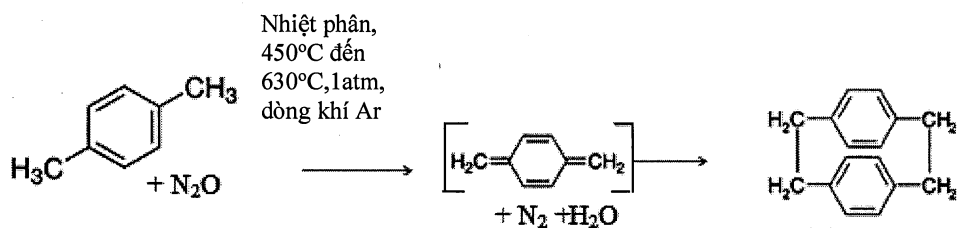
Phản ứng 1:

Để tạo thành chất trung gian phản ứng p-xylylen, một ống phản ứng nhiệt phân được lắp đặt. Yếu tố chủ yếu trong vùng được gia nhiệt là một ống Inconel (hợp kim niken 600) (0,325" OD X 0,277" ID X 60" length, Grainger # 3ACP8). Ống này được đun nóng bằng điện đến các nhiệt độ được chỉ định. Một dòng hỗn hợp khí argon bao gồm nitơ oxit (Airgas # UM1070) với hơi xylem (Aldrich #134449-4L) trong khí mang argon (Airgas#UM1006) được đưa vào trong ống với tốc độ dòng tổng cộng là 20 đến 100 mL/phút ở nhiệt độ từ 450°C đến 630°C và ở áp suất khí quyển. Tỷ lệ các khí được điều chỉnh để tạo ra tỷ lệ mol cân bằng hóa học xấp xỉ 1:1 (xylen so với nitơ oxit). Khí đi ra bao gồm một dòng khí phản ứng không màu. Sự ngưng tụ của khí trên một bình thủy tinh được làm lạnh tạo ra sự lắng đọng của chất rắn không màu đến màu kem. Chất rắn này tan một phần trong etanol 95%. Chất rắn này được so sánh với mẫu [2,2']paraxyclophan (Aldrich #P225-5G-A) bằng phân tích GC (SRI#310, 15m, cột megabore, máy dò FID) và được hiển thị để cho ra các thời gian lưu giống nhau. Ở các nhiệt độ cao hơn (650°C đến 800°C) đầu ra của ống phản ứng đủ nóng để giữ monome p-xylylen ở dạng monome. Sự làm lạnh nhanh của monome trên một bề mặt

dẫn tới sự ngưng tụ dạng lỏng của monome và sự polyme hóa nhanh monome thành polyme. Sự so sánh màng tạo ra theo đó dường như là giống với màng parylen được tạo ra bởi quy trình Gorham. (Hằng số điện môi của cả hai phép đo là 3, độ mạnh đánh thủng điện môi đồng nhất là 100 V/micromet, và độ tan của các dung dịch nóng và lạnh ở dưới mức độ có thể phát hiện được.)

Trong phản ứng này, người ta coi, nhưng chưa được chứng minh, rằng chất trung gian phản ứng p-xylylen được tạo thành và sau đó được dime hóa trong ống phản ứng hoặc trong suốt quá trình ngưng tụ trên bình chứa bằng thủy tinh. Phản ứng này được dùng để tổng hợp dime, khi so sánh với “quy trình Gorham” đã biết, dẫn đến một sự cải tiến lớn trong năng suất tổng thể tổng hợp dime và cũng dẫn đến một sự cải tiến lớn về độ tinh khiết của dime trực tiếp từ phản ứng. Điều này được hiểu rằng sự thay đổi về các lượng cân bằng hóa học của các chất phản ứng có thể được điều chỉnh để cung cấp năng suất cao hơn hoặc thấp hơn với độ tinh khiết kết hợp thay đổi để tạo ra một quy trình kinh tế hơn hoặc hiệu quả sản xuất tổng thể tốt hơn mà không lệch đáng kể ra khỏi phạm vi của sáng chế. Sự tinh chế tiếp theo các nguyên liệu từ phản ứng này có thể được thực hiện trên nguyên liệu này theo cách dễ dàng để thực hiện hơn nhiều so với các quy trình được nêu ra trước đây.

Phản ứng được chỉ ra dưới đây.

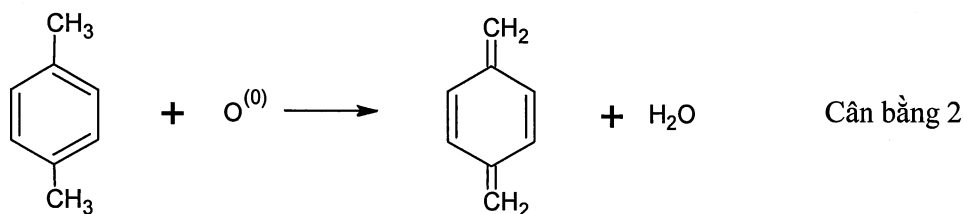


Khi nhiệt độ phản ứng tăng lên >650°C, sự kết tủa monome xylylen có thể được tiến hành trực tiếp trên một chất nền rắn mà không cần phải tách dime trung gian. Sự lắng đọng khí đi ra ở nhiệt độ phản ứng trên 650°C khi có một đĩa thủy tinh được làm lạnh dẫn đến sự hình thành hợp chất không tan ethanol biểu hiện các đặc tính của polyme parylen. Tuy nhiên, đặc tính về độ tan cho thấy rõ ràng rằng nguyên liệu

không tan trong tất cả các dung môi thông dụng (tức là hexan, xylene, etyl axetat, etanol, nước).

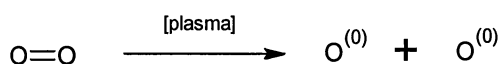
Lượng nitơ oxit tăng lên dẫn tới sự oxy hóa xylene một phần và/hoặc hoàn toàn với sự giảm hình thành cyclophan mong muốn hoặc polyme của nó. Việc kiểm soát chặt chẽ cân bằng hóa học là điều mong muốn trong phản ứng pha khí này.

Người ta giả thiết rằng cơ chế phản ứng được tiến hành qua con đường bao gồm sự phân hủy nitơ oxit trước. Nitơ oxit là một phân tử không bền về mặt năng lượng có thể bị phân hủy bởi nhiệt ở nhiệt độ cao. Các sản phẩm của phản ứng là nitơ lưỡng nguyên tử và oxy đơn nguyên tử. Oxy đơn nguyên tử có khả năng phản ứng với chính nó để tạo ra oxy lưỡng nguyên tử, nhưng phản ứng này là tương đối chậm. Có nhiều con số ước tính xác định nhiệt độ mà sự phân hủy thuần túy bởi nhiệt xảy ra, nhưng thường được kể đến là 1100°C . Chất xúc tác của phản ứng này được chỉ ra ở dưới trong cân bằng 1 được biết đến là xảy ra với một loạt các oxit kim loại và hỗn hợp các oxit kim loại. Một số nhiệt độ được sử dụng để phân hủy nitơ oxit với các chất xúc tác nhất định là dưới 350°C .



Dạng phản ứng đối với quá trình này rất có thể là oxy đơn nguyên tử được tạo ra từ sự phân hủy nitơ oxit. Theo nghĩa này, nitơ oxit có thể được xem là một chất mang tiện lợi cho việc cung cấp chất trung gian phản ứng oxy đơn nguyên tử. Sau đó người ta sẽ nghĩ rằng oxy lưỡng nguyên tử có thể được sử dụng để thực hiện phản ứng tương tự. Tuy nhiên, việc sử dụng oxy lưỡng nguyên tử trong cùng các điều kiện như nitơ oxit không tạo ra phản ứng. Với sự kích hoạt phản ứng bằng một ngọn lửa plasma nóng, sự bắt lửa của xylene xảy ra với các sản phẩm phụ nhiều màu sắc cũng như là sự giảm đáng kể hiệu suất của sản phẩm mong muốn.

Theo cách tương tự đối với phản ứng nitơ oxit, oxy lưỡng nguyên tử có thể được sử dụng làm chất phản ứng. Tuy nhiên, để tạo ra sản phẩm mong muốn với hiệu suất đáng kể, sự kích hoạt oxy là cần thiết. Người ta coi, nhưng không được chứng minh, rằng sự kích hoạt oxy là do sự kích thích của phân tử oxy để tạo ra oxy đơn nguyên tử như được chỉ ra trong Cân bằng 3.



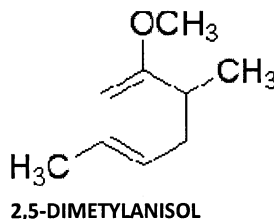
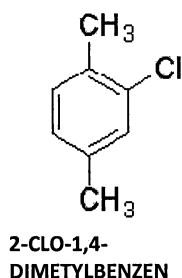
Cân bằng 3

Do đó, phản ứng với oxy đơn nguyên tử được tạo ra theo cách này trong Cân bằng 2 xảy ra theo cách tương tự với cách của quá trình phân hủy nitơ oxit.

Sự giải thích cơ học phản ứng hóa học được cung cấp trong bản mô tả này là đối với một khuôn khổ được đề xuất cho sự thảo luận về các kết quả, và không hạn chế để thực hiện các kết quả thực tế của các quá trình sáng chế được mô tả ở đây. Các cách giải thích khác có thể mô tả đầy đủ một số kết quả trong tài liệu này và có thể thích hợp để thảo luận về kiến trúc, nhưng dù sao chúng cũng không làm giảm giá trị của sáng chế được mô tả trong bản mô tả này hoặc trong thí nghiệm phân tích được mô tả.

Việc làm lạnh các khí có nhiệt độ cao đi ra khỏi ống phản ứng là điều cần thiết. Nếu khí phản ứng ở nhiệt độ quá cao, khả năng chất trung gian phản ứng ngưng tụ và bám vào bề mặt sẽ bị giảm đáng kể. Với mục đích này, một thiết bị trộn các khí không phản ứng lạnh vào dòng phản ứng nóng được đưa ra. Ngoài ra, phản ứng có thể được tiến hành ở áp suất giảm (áp suất khí quyển ở trên), và một van giãn nở có thể được sử dụng tại lối ra của phản ứng để tạo ra hiệu ứng Joule-Thomson làm lạnh khí nóng khi khí này ở dưới nhiệt độ nghịch đảo của nó. Các phương pháp để thực hiện cả hai việc này cũng được biết đến, và có thể được tích hợp tùy ý vào quy trình.

Phương pháp có thể được mở rộng đối với các chất khác chẳng hạn một trong các chất dưới đây.



Cần lưu ý rằng các nhóm thế chẳng hạn một trong các nhóm nêu ở trên (clo, diclo, metoxy, và metyl) không phải chỉ là các nhóm thế thơm có khả năng bị biến đổi bởi quá trình này thành các chất trung gian phản ứng và các polyme tiếp theo của chúng. Ngoài ra, paraxyclophan và các hợp chất được dẫn xuất của nó không loại trừ khỏi quy trình này. Sự định hướng meta và ortho của các nhóm thế trên vòng thơm cũng là các nguyên liệu phản ứng ban đầu khả thi. Phản ứng này có thể được khái quát hóa để bao gồm tất cả các hợp chất có khả năng phản ứng với nitơ oxit hoặc các sản phẩm phản ứng trung gian của nó và cũng chứa các nguyên tử hydro được bền hóa bởi sự có mặt của vòng thơm. Thông thường các nguyên tử hydro được đặt ở vị trí alpha đối với vòng phenyl (vị trí benzylic). Cấu trúc Michael được di chuyển từ các vị trí vòng thơm alpha được biết đến để tạo ra độ phản ứng tương tự với hydro alpha đối với các vị trí vòng thơm như được biết đến bởi những người có tay nghề trong tổng hợp hữu cơ. Tuy nhiên, độ phản ứng của các nguyên tử hydro này không bị hạn chế bởi các vị trí alpha và/hoặc Michael từ vòng thơm hoặc vòng thơm chẳng hạn benzen. Sự ổn định thơm hóa khác được biết đến đối với nhiều vòng khác nhau, các vòng hợp nhất, và hệ thống không vòng, như được biết đến bởi các chuyên gia trong lĩnh vực hóa học hữu cơ. Các nguyên liệu ban đầu này tốt nhất là có thể có mặt hai nguyên tử hydro có khả năng bị di chuyển để tạo ra nguyên liệu ban đầu bị oxi hóa một phần. Các nguyên liệu ưu tiên này có thể tùy ý có khả năng dime hóa, trime hóa, oligome hóa, hoặc polyme hóa. Ví dụ được sử dụng trong sáng chế là p-xylene.

Ngoài ra, khí plasma có thể được sử dụng với các nguyên liệu ban đầu đã nêu ở trên để tạo ra các sản phẩm bị oxi hóa trung gian có thể phản ứng tiếp để tạo ra sản phẩm phản ứng là các dạng bị oxy hóa của nguyên liệu ban đầu, các dạng này có thể là monome, dime, trime, oligome, hoặc polyme.

Việc xử lý các bề mặt phản ứng có thể tiếp xúc với sản phẩm của các phản ứng này sử dụng cách làm sạch bề mặt bằng plasma trước khi tiếp xúc với các chất trung gian phản ứng cũng được biết rất rõ. Tuy nhiên, quá trình đó là ngẫu nhiên đối với phương pháp này khi hình thành các hợp chất hóa học cần thiết cho lớp phủ hoặc polyme.

Một phương pháp để hình thành plasma được ghi rất rõ trong tài liệu và được biết đến bởi những người thân thuộc trong lĩnh vực hình thành plasma. Phản ứng 2, một ví dụ về phản ứng plasma này sử dụng phương pháp tương tự như được mô tả trong phản ứng 1, là một phương án khác trong phương pháp tổng quát này.

Vì phản ứng là tương tự cho tất cả các hợp chất được yêu cầu bảo hộ cho phương pháp này, việc dùng p-xylene sẽ được sử dụng cho mục đích thảo luận. Đối với những chuyên gia trong lĩnh vực hóa học, điều rõ ràng là việc sử dụng các hợp chất tương tự sẽ mang lại kết quả tương tự, và do đó việc thảo luận một cách thấu đáo về sự khác nhau về cấu trúc trong phản ứng có thể sẽ bổ sung rất ít vào các giáo lý của khám phá này.

Phản ứng 2:

Một ống thạch anh có đường kính 3/8" và chiều dài 12" được gắn vào một ống thép không gỉ 316 1/16" kết nối với một nguồn khí (chẳng hạn argon hoặc nitơ). Ống thép không gỉ được lắp ở vị trí sao cho đó là một khoảng cách ngắn từ một điện cực tiếp đất (xấp xỉ 5mm đến 15mm). Một nguồn phát plasma (InfoUnlimited PVM-400, 20 đến 50 kHz, 0 đến 6000V) được nối với ống 1/16" và điện cực tiếp đất. Điện cực tiếp đất được lắp đặt và được kết nối sao cho các khí sau khi đi qua điện cực tiếp đất được phép trộn lẫn với một hỗn hợp argon/p-xylene. Hỗn hợp tạo thành được cho đi qua một ống X 12" có đường kính 3/8" ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ nhiệt độ phòng đến 800°C. Điện năng được cung cấp cho các máy phát đủ để cho phép phản ứng của xylene hoặc các nguyên liệu ban đầu khác xảy ra hầu hết để hoàn thành. Phản ứng hoàn toàn nguyên liệu ban đầu là không cần thiết. Ở nhiệt độ thấp hơn (từ nhiệt độ phòng đến 500°C), một chất rắn được tạo thành ở đầu ra của ống. Ở nhiệt độ cao (500 đến 650°C) sản phẩm đầu ra của ống có thể được trộn lẫn với các khí lạnh

và/hoặc được làm lạnh trực tiếp chất rắn hoặc chất lỏng đích để ngưng tụ dime. Ở nhiệt độ thậm chí cao hơn (650 đến 800°C) sản phẩm đầu ra của ống có thể được trộn lẫn với các khí lạnh và/hoặc được làm lạnh trực tiếp chất rắn hoặc chất lỏng đích để ngưng tụ monome. Sự polyme hóa tiếp theo của monome được ngưng tụ có thể xảy ra rất nhanh chóng.

Sự thay thế nitơ cho argon và/hoặc các khí trơ cơ bản khác là điều có thể mà không làm sai lệch đáng kể từ quy trình này. Hơn nữa, sự thay đổi cực điện cực, vật liệu điện cực, vật liệu chặn, và nhiệt độ là điều có thể mà không làm sai lệch đáng kể ra khỏi phạm vi của sáng chế này.

Vì sự ngưng tụ của “monome” của p-xylen là rất khó do nhiệt độ cao của phản ứng, điều thuận lợi là bổ sung các khí trơ lạnh vào các sản phẩm phản ứng. Phương pháp để thực hiện việc này là rất đơn giản và đã được biết đến.

Ở vị trí của phương pháp khí lạnh đối với việc làm lạnh các sản phẩm phản ứng, có một số lợi thế cho phép phản ứng được tiến hành ở áp suất cao hơn và cho phép các sản phẩm phản ứng mở rộng vào một môi trường áp suất thấp hơn. Sự làm lạnh Joule-Thomson xảy ra, và các sản phẩm phản ứng được làm lạnh rất nhanh. Sự ngưng tụ tiếp theo trên bề mặt đích có thể xảy ra với một tải lượng nhiệt thấp hơn trên bề mặt đích.

Sự biến đổi các phản ứng trên đây có thể được thực hiện để đưa ra các biến thể về tính chất vật lý của polyme và các sản phẩm phản ứng tạo thành. Phương pháp để thực hiện việc này được mô tả dưới đây.

Sự biến đổi phản ứng 1: Kiểm soát hằng số điện môi

Ở đầu ra của phản ứng được mô tả ở trên, dòng khí sản phẩm phản ứng được dẫn đến một bề mặt rắn lạnh. Bề mặt đích được nhấn chìm trong một từ trường, chẳng hạn được tạo ra bởi một nam châm Neodymium (S84, K&J Magnetics). Sự ngưng tụ monome và trùng hợp sau đó có thể được tiến hành nhanh chóng khi ở trong từ trường. Nếu bề mặt đích và từ trường duy trì hướng tương đối như nhau trong suốt quá trình trùng hợp, thì sau đó sự tăng lên của đường nền hằng số điện môi sẽ xảy ra.

Nếu hướng của từ trường có quan hệ với bề mặt đích bị quay trong quá trình trùng hợp hoặc quá trình ngưng tụ pha rắn, thì hằng số điện môi tạo thành sẽ bị giảm bớt.

Khi phản ứng được thực hiện như đã nêu ở trên, bằng cách sử dụng monome p-xylylen làm phân tử trùng hợp, nhưng không có mặt của từ trường, hằng số điện môi tương đối của vật liệu xấp xỉ bằng 3. Khi vật liệu được vận hành như được mô tả với mật độ từ thông xấp xỉ khoảng 200 đến 2000 Gauss, hằng số điện môi tương đối xấp xỉ bằng 7. Do đó, từ trường đã làm tăng đáng kể hằng số điện môi lên với hệ số bằng 2 lần. Theo cách tương tự, các muối khác, lưỡng cực, và các muối của axit hữu cơ có thể được định hướng entropi trong suốt quá trình hóa rắn hoặc trùng hợp để tạo ra các vật liệu có hằng số điện môi tăng cao. Những cải thiện về hằng số điện môi nằm trong khoảng từ 10 đến trên 1000%.

Sự biến đổi phản ứng 2: Kiểm soát sự định hướng tĩnh điện kín

Ở đầu ra của các phản ứng được mô tả ở trên, dòng khí sản phẩm phản ứng được dẫn đến một bề mặt rắn lạnh. Bề mặt đích được nhấn chìm trong một điện trường, chẳng hạn được tạo ra bởi một nguồn cung cấp điện áp cao (G40, Emco, khoảng cách dẫn 2" ở 4000V). Sự ngưng tụ monome và trùng hợp sau đó có thể được tiến hành nhanh chóng khi ở trong điện trường. Nếu bề mặt đích và điện trường duy trì hướng tương đối như nhau trong suốt quá trình trùng hợp, thì sau đó sự tăng lên của đường nền hằng số điện môi sẽ xảy ra. Nếu hướng của điện trường có quan hệ với bề mặt đích bị quay trong quá trình trùng hợp hoặc quá trình ngưng tụ pha rắn, thì hằng số điện môi tạo thành sẽ bị giảm bớt.

Khi phản ứng được thực hiện như đã nêu ở trên, bằng cách sử dụng muối xua axit maleic với guanidin làm vật liệu cách điện cao, nhưng không có mặt của điện trường, hằng số điện môi tương đối của vật liệu xấp xỉ bằng 500. Khi vật liệu được vận hành như được mô tả với mật độ điện trường khoảng từ 10.000 đến 30.000 V/m, hằng số điện môi tương đối xấp xỉ từ 25000 đến 40000. Do đó, điện trường đã làm tăng đáng kể hằng số điện môi lên với hệ số ít nhất bằng 25 lần trong trường hợp cụ thể. Theo cách tương tự, các muối khác, lưỡng cực, và các muối của axit hữu cơ có thể được định hướng entropi trong suốt quá trình hóa rắn hoặc trùng hợp để tạo ra các

vật liệu có hằng số điện môi tăng cao. Những cải thiện về hằng số điện môi nằm trong khoảng từ 50 đến trên 10000%.

Việc sử dụng điện trường và/hoặc từ trường trong suốt quá trình ngưng tụ sẽ làm thay đổi sức mạnh cơ học. Vật liệu có thể không bất đẳng hướng sau khi ngưng tụ trong các trường mạnh. Do đó, phương pháp này là một cách để kiểm soát các tính chất cơ học của sản phẩm phản ứng được tạo ra bởi quy trình này.

Khi nhìn vào Fig. 3, một biểu đồ tuyến tính mức độ cao minh họa một phương pháp mẫu để tạo ra vật liệu có hằng số điện môi tăng theo các nguyên tắc của sáng chế. Các vùng, còn được gọi là các buồng, có thể bao gồm các bể chứa có một đầu vào và một đầu ra hoặc các cấu trúc hình ống có một đầu vào và một đầu ra. Buồng 210 là một ống được làm nóng hoặc là một thiết bị bay hơi khác để làm bay hơi nguyên liệu cấp ban đầu 200. Nguyên liệu cấp ban đầu 200 được làm bay hơi và được trộn với khí trơ 205 trong buồng 210. Khí trơ 205 có thể là khí bất kỳ trong nhóm các khí trơ, ví dụ, nhưng không giới hạn bởi, Argon. Sự thay thế nitơ cho argon và/hoặc các khí trơ chủ yếu khác là có thể. Các bơm và van được sử dụng để đẩy và kiểm soát dòng chất lỏng từ trạm này đến trạm khác.

Bằng cách ví dụ và không giới hạn, buồng 210 có thể bao gồm một ống phản ứng nhiệt phân Inconel (hợp kim niken 600) được làm nóng bằng điện. Ống này được làm nóng đến nhiệt độ khoảng từ 450°C đến 630°C ở áp suất khí quyển. Một dòng chảy khí argon một mình, hoặc cùng với hợp chất phản ứng chẳng hạn như nitơ oxit, được cấp vào ống phản ứng nhiệt phân. Nguồn cấp nguyên liệu ban đầu 200 có thể là hơi xylene (Aldrich #134449-4L). Nếu khí mang 205 bao gồm hợp chất phản ứng (ví dụ, N₂O), tỉ lệ các khí được điều chỉnh để tạo ra tỉ lệ mol cân bằng hóa học xấp xỉ 1:1 (xylene so với nitơ oxit).

Nguyên liệu ban đầu được làm nóng 200 trong hỗn hợp dễ bay hơi với khí trơ phản ứng với oxy đơn nguyên tử trong buồng phản ứng 215. Do rất phản ứng và nhất thời, oxy đơn nguyên tử phải sẵn có để phản ứng với hỗn hợp dễ bay hơi trong buồng phản ứng 215. Như đã đề cập ở trên, nguồn oxy đơn nguyên tử có thể là hợp chất khí

được cung cấp với khí mang 205, hoặc hợp chất khí được cung cấp riêng rẽ 240, hoặc nguồn khác, chẳng hạn nguồn phát plasma 235.

Plasma oxy đơn nguyên tử có thể được tạo ra bằng cách cho khí oxy (O_2) ở áp suất thấp tiếp xúc với một nguồn năng lượng điện năng cao, chẳng hạn nguồn phóng tần số radio (RF), nguồn này ion hóa chất khí. Ngoài ra, hợp chất chẳng hạn như Nitơ Oxit (N_2O) có thể cung cấp oxy đơn nguyên tử cho phản ứng. Do đó, nguồn phát plasma oxy đơn nguyên tử 235, hoặc nguồn cấp hợp chất hóa học oxy đơn nguyên tử (ví dụ, N_2O) 240, hoặc nguồn cấp oxy đơn nguyên tử khác được cung cấp.

Khí plasma có thể được sử dụng với các nguyên liệu ban đầu đã nêu ở trên để tạo thành các sản phẩm trung gian bị oxy hóa mà có thể phản ứng tiếp để tạo thành các sản phẩm phản ứng là các dạng bị oxy hóa của nguyên liệu ban đầu có thể là các monome, dime, trime, oligome, hoặc polyme. Nguồn phát plasma 235 bao gồm một bộ cấp khí 230 cung cấp khí cho buồng phản ứng plasma 220. Bộ điều khiển plasma 225 cung cấp năng lượng điện năng cao để ion hóa chất khí.

Tỉ lệ các khí được điều chỉnh để tạo ra tỉ lệ mol cân bằng hóa học xấp xỉ 1:1 (xylen so với nitơ oxit hoặc xylen so với plasma oxy đơn nguyên tử). Theo minh họa, lượng nitơ oxit tăng lên dẫn đến sự oxy hóa một phần và/hoặc hoàn toàn xylen với sự giảm hình thành xyclophan mong muốn hoặc polyme của nó. Sự kiểm soát chặt chẽ về cân bằng hóa học là điều mong muốn trong phản ứng pha khí này.

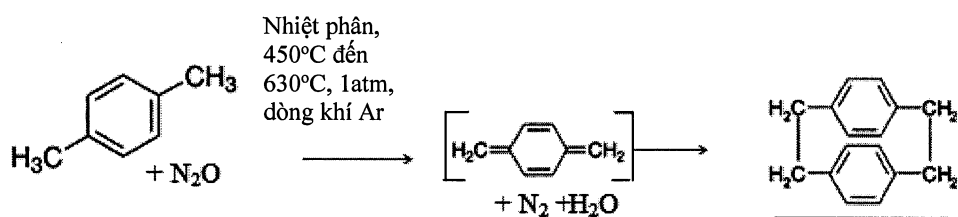
Sản phẩm phản ứng được cung cấp vào buồng phản ứng 235, buồng này được gia nhiệt đến xấp xỉ từ 450°C đến 800°C để tạo thuận lợi cho sự bay hơi sản phẩm phản ứng. Các sản phẩm phản ứng bay hơi 245 được xả ra trên một bề mặt thu hồi có nhiệt độ thấp 250, ở đây sản phẩm phản ứng ngưng tụ và tạo thành chất rắn. Ở nhiệt độ cao hơn (650°C đến 800°C) đầu ra của buồng phản ứng 235 là đủ nóng để giữ monome p-xylylen ở dạng monome.

Sự ngưng tụ chất khí trên bình thủy tinh lạnh dẫn đến sự lắng đọng một chất rắn từ không màu đến màu kem. Chất rắn này tan một phần trong etanol 95%. Chất rắn này được so sánh với mẫu [2,2']paraxyclophan (Aldrich #P225-5G-A) bằng phân

tích GC (SRI#310, 15m, cột megabore, máy dò FID) và được hiển thị để tạo ra các thời gian lưu đồng nhất.

Sự làm lạnh nhanh monome trên bề mặt 250 dẫn tới sự ngưng tụ chất lỏng monome và sự trùng hợp nhanh monome thành polyme. So sánh màng được tạo ra theo cách này dường như là giống với màng parylen được tạo ra bởi quy trình Gorham. Nếu không tăng lên, hằng số điện môi của sản phẩm hóa rắn bằng khoảng 3, độ mạnh đánh thủng điện môi đồng nhất khoảng 100 V/micromet, và độ tan trong cả các dung môi nóng và lạnh đều ở dưới mức có thể phát hiện được.

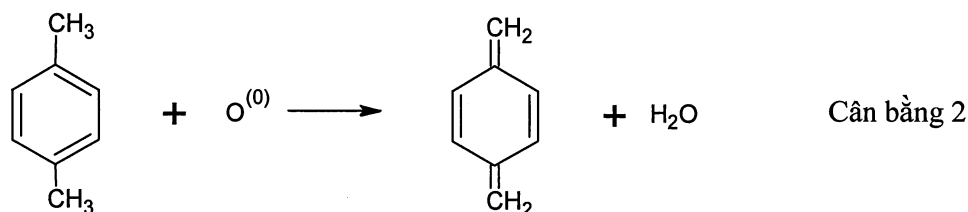
Trong phản ứng này người ta tin rằng chất trung gian phản ứng p-xylylen được tạo thành và được dime hóa tiếp trong ống phản ứng 235 hoặc trong quá trình ngưng tụ 245 trên chất nền 250. Phản ứng này được sử dụng để tổng hợp dime, khi so sánh với “quy trình Gorham” đã biết, dẫn đến sự cải tiến lớn về hiệu suất tổng hợp tổng thể dime và cũng dẫn đến sự cải tiến lớn về độ tinh khiết của dime thu được từ phản ứng. Điều này được hiểu rằng sự thay đổi các lượng cân bằng hóa học của các chất phản ứng có thể được điều chỉnh để tạo ra hiệu suất lớn hơn hoặc thấp hơn với độ tinh khiết tương ứng thay đổi để cung cấp một quy trình kinh tế hơn hoặc hiệu quả sản xuất tổng thể tốt hơn mà không làm sai lệch đáng kể ra khỏi phạm vi của sáng chế. Sự tinh chế nguyên liệu tiếp theo từ phản ứng này có thể được thực hiện trên nguyên liệu này theo cách thực hiện dễ dàng hơn nhiều so với quy trình đã đề cập trước đó. Phản ứng được chỉ ra dưới đây.



Vì nhiệt độ phản ứng ở trạm 235 tăng lên đến $>650^\circ\text{C}$, sự lắng đọng của monome xylylen có thể được thực hiện trực tiếp trên nền đích rắn mà không cần tách chất trung gian dime. Sự lắng đọng của khí đi ra ở nhiệt độ phản ứng trên 650°C khi có một đĩa thủy tinh lạnh dẫn đến sự hình thành hợp chất etanol không tan thể hiện

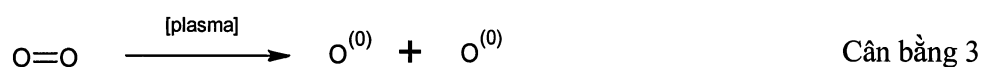
các đặc tính của polyme parylen. Tuy nhiên, các đặc tính về độ tan rõ ràng cho thấy rằng nguyên liệu này không tan trong tất cả các dung môi thông dụng (tức là hexan, xylen, etyl axetat, etanol, nước).

Người ta cho rằng cơ chế phản ứng xảy ra qua con đường bao gồm bước phân hủy nitơ oxit trước. Nitơ oxit là phân tử không bền về mặt năng lượng có thể bị phân hủy bởi nhiệt ở nhiệt độ cao. Sản phẩm của phản ứng là nitơ lưỡng nguyên tử và oxy đơn nguyên tử. Oxy đơn nguyên tử có thể phản ứng với chính nó để tạo ra oxy lưỡng nguyên tử, nhưng phản ứng này xảy ra tương đối chậm. Nhiều con số ước tính xác định nhiệt độ mà sự phân hủy thuần túy bởi nhiệt xảy ra, nhưng thường được kể đến là ở 1100°C. Chất xúc tác của phản ứng này như được chỉ ra dưới đây trong cân bằng 1 được biết đến là một loạt các oxit kim loại và hỗn hợp các oxit kim loại. Nhiệt độ thường được sử dụng để phân hủy nitơ oxit với các chất xúc tác nhất định là dưới 350°C.



Phân tử phản ứng cho quá trình này rất có thể là oxy đơn nguyên tử được tạo thành từ sự phân hủy nitơ oxit. Trong bối cảnh này, nitơ oxit có thể được xem là một chất mang thích hợp để cung cấp chất trung gian phản ứng oxy đơn nguyên tử.

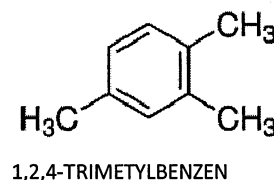
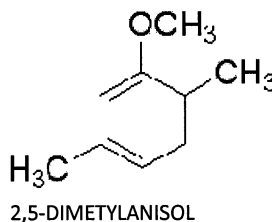
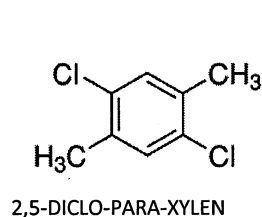
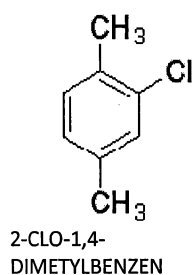
Theo cách tương tự với phản ứng nitơ oxit, oxy lưỡng nguyên tử tinh khiết có thể được sử dụng làm chất phản ứng. Tuy nhiên, để tạo ra hiệu suất đáng kể đối với các sản phẩm mong muốn, sự hoạt hóa oxy là cần thiết. Người ta cho rằng sự hoạt hóa oxy là do sự kích thích của phân tử oxy để tạo ra oxy đơn nguyên tử như được chỉ ra trong Cân bằng 3.



Phản ứng với oxy đơn nguyên tử được tạo ra theo cách này do đó xảy ra tương tự với phản ứng theo con đường phân hủy nitơ oxit.

Việc làm lạnh các khí ở nhiệt độ cao 245 đi ra khỏi ống phản ứng 235 là điều cần thiết. Nếu khí phản ứng ở nhiệt độ quá cao, khả năng chất trung gian phản ứng ngưng tụ và bám dính vào bề mặt sẽ giảm đáng kể. Do đó, một thiết bị để trộn các khí lạnh không phản ứng thành một dòng phản ứng nóng được đưa ra. Phản ứng có thể được thực hiện ở áp suất tăng (trên áp suất khí quyển). Theo đó, một van giãn nở có thể được sử dụng ở đầu ra của ống phản ứng 235 để tạo ra hiệu ứng Joule-Thomson làm lạnh các khí nóng khi khí này ở dưới nhiệt độ nghịch đảo của nó.

Phương pháp có thể được mở rộng đối với các hợp chất khác chẳng hạn một trong các chất được chỉ ra dưới đây.



Các nhóm thế chẳng hạn một trong các nhóm nêu ở trên (clo, diclo, metoxy, và metyl) không phải chỉ là các nhóm thế thơm có khả năng bị biến đổi bởi quá trình này thành các chất trung gian phản ứng và các polyme tiếp theo của chúng. Ngoài ra, paraxyclophan và các hợp chất được dẫn xuất của nó không loại trừ khỏi quy trình này. Sự định hướng meta và ortho của các nhóm thế trên vòng thơm cũng là các nguyên liệu phản ứng ban đầu khả thi. Phản ứng này có thể được khái quát hóa để bao gồm tất cả các hợp chất có khả năng phản ứng với oxy đơn nguyên tử được tạo ra từ plasma hoặc từ nitơ oxit bị phân hủy hoặc các sản phẩm phản ứng trung gian của nó và cũng chứa các nguyên tử hydro được bền hóa bởi sự có mặt của vòng thơm. Thông thường các nguyên tử hydro được đặt ở vị trí alpha đối với vòng phenyl (vị trí benzylic). Cấu trúc Michael được di chuyển từ các vị trí vòng thơm alpha được biết đến để tạo ra độ phản ứng tương tự với hydro alpha đối với các vị trí vòng thơm như

được biết đến bởi những người có tay nghề trong tổng hợp hữu cơ. Tuy nhiên, độ phản ứng của các nguyên tử hydro này không bị hạn chế bởi các vị trí alpha và/hoặc Michael từ vòng thơm hoặc vòng thơm chẳng hạn benzen. Sự ổn định thơm hóa khác được biết đến đối với nhiều vòng khác nhau, các vòng hợp nhất, và hệ thống không vòng, như được biết đến bởi các chuyên gia trong lĩnh vực hóa học hữu cơ. Các nguyên liệu ban đầu này tốt nhất là có thể có mặt hai nguyên tử hydro có khả năng bị di chuyển để tạo ra nguyên liệu ban đầu bị oxi hóa một phần. Các nguyên liệu ưu tiên này có thể tùy ý có khả năng dime hóa, trime hóa, oligome hóa, hoặc polyme hóa. Ví dụ không hạn chế được sử dụng trong sáng chế là p-xylen.

Một phương án thực hiện của sáng chế làm tăng hằng số điện môi của polyme bằng cách cho các sản phẩm phản ứng ngưng tụ 245 tiếp xúc với một từ trường hoặc điện trường. Ở đầu ra của phản ứng được mô tả ở trên, dòng khí sản phẩm phản ứng 245 được dẫn đến một bề mặt rắn lạnh 250. Như được minh họa, bề mặt đích 250 có thể được nhấn chìm trong từ trường 255 chẳng hạn từ trường được tạo ra bởi một nam châm Neodymium (S84, K&J Magnetics). Các nguồn từ trường khác có thể được sử dụng và được dự định nằm trong phạm vi của sáng chế. Sự ngưng tụ monome và trùng hợp sau đó có thể được tiến hành nhanh chóng khi ở trong từ trường 255. Nếu bề mặt đích và từ trường duy trì hướng tương đối như nhau trong suốt quá trình trùng hợp, thì sau đó sự tăng lên của đường nền hằng số điện môi sẽ xảy ra. Nếu hướng của từ trường 255 có quan hệ với bề mặt đích bị quay trong quá trình trùng hợp hoặc quá trình ngưng tụ pha rắn, thì hằng số điện môi tạo thành sẽ bị giảm.

Khi phản ứng được thực hiện như đã nêu ở trên, bằng cách sử dụng monome p-xylylen làm phân tử trùng hợp, nhưng không có mặt của từ trường, hằng số điện môi tương đối của vật liệu xấp xỉ bằng 3. Khi vật liệu được vận hành như được mô tả với từ trường 255 có mật độ từ thông xấp xỉ khoảng 200 đến 2000 Gauss, hằng số điện môi tương đối xấp xỉ bằng 7. Do đó, từ trường đã làm tăng đáng kể hằng số điện môi lên với hệ số bằng 2 lần. Theo cách tương tự, các muối khác, lưỡng cực, và các muối của axit hữu cơ có thể được định hướng entropi trong suốt quá trình hóa rắn hoặc trùng hợp để tạo ra các vật liệu có hằng số điện môi tăng cao. Những cải thiện về hằng số điện môi nằm trong khoảng từ 10 đến trên 1000% có thể đạt được.

Trong một phương án thực hiện khác, bề mặt đích 250 được nhúng chìm trong một điện trường 255 chẳng hạn điện trường được tạo ra bởi một nguồn cung cấp điện áp cao (G40, Emco, khoảng cách dẫn 2" ở 4000V). Sự ngưng tụ monome và trùng hợp sau đó có thể được tiến hành nhanh chóng khi ở trong điện trường. Nếu bề mặt đích và điện trường duy trì hướng tương đối như nhau trong suốt quá trình trùng hợp, thì sau đó sự tăng lên của đường nền hằng số điện môi sẽ xảy ra. Nếu hướng của điện trường có quan hệ với bề mặt đích bị quay trong quá trình trùng hợp hoặc quá trình ngưng tụ pha rắn, thì hằng số điện môi tạo thành sẽ bị giảm.

Sự ngưng tụ các sản phẩm phản ứng điện môi với sự có mặt của điện trường và/hoặc từ trường làm tăng hằng số điện môi của điện môi được ngưng tụ. Bước này có thể được áp dụng cho các hợp chất khác ngoài polyme parylen.

Khi bước ngưng tụ được thực hiện như đã nêu ở trên, bằng cách sử dụng muối xua axit maleic với guanidin làm vật liệu điện môi cao, nhưng không có mặt của điện trường, hằng số điện môi tương đối của vật liệu xấp xỉ bằng 500. Khi vật liệu được vận hành như được mô tả với mật độ điện trường khoảng từ 10.000 đến 30.000 V/m, hằng số điện môi tương đối xấp xỉ từ 25000 đến 40000. Do đó, điện trường đã làm tăng đáng kể hằng số điện môi lên với hệ số ít nhất bằng 25 lần trong trường hợp cụ thể. Theo cách tương tự, các muối khác, lưỡng cực, và các muối của axit hữu cơ có thể được định hướng entropi trong suốt quá trình hóa rắn hoặc trùng hợp để tạo ra các vật liệu có hằng số điện môi tăng cao. Những cải thiện về hằng số điện môi nằm trong khoảng từ 50 đến trên 10000%.

Việc sử dụng điện trường và/hoặc từ trường trong suốt quá trình ngưng tụ làm thay đổi sức mạnh cơ học. Vật liệu có thể không bất đẳng hướng sau khi ngưng tụ trong các trường mạnh. Do đó, phương pháp này là một cách để kiểm soát các tính chất cơ học của sản phẩm phản ứng được tạo ra bởi quy trình này.

Khi một phương án điển hình của sáng chế được mô tả, cần phải hiểu rõ ràng rằng những thay đổi và biến thể của nó là có thể, tất cả đều nằm trong tinh thần và phạm vi của sáng chế. Đối với những mô tả ở trên, nó được nhận ra rằng những mối quan hệ tối ưu đối với các thành phần và các bước của sáng chế, bao gồm các biến thể theo trật tự, hình thức, nội dung, chức năng và cách thức vận hành, được coi là quá rõ ràng và hiển nhiên đối với chuyên gia trong lĩnh vực kỹ thuật, và tất cả những mối quan hệ tương đương với những gì được minh họa trong các hình vẽ và được mô tả trong bản mô tả được dự tính là sẽ được bao gồm bởi toàn bộ sáng chế. Phần mô tả và các hình vẽ nêu trên là sự minh họa cho những biến thể có thể được thực hiện mà không lệch ra khỏi sáng chế, phạm vi của sáng chế chỉ bị giới hạn bởi những yêu cầu bảo hộ sau đây. Do đó, những phần nêu trên được coi là chỉ minh họa các nguyên tắc của sáng chế. Hơn nữa, vì rất nhiều những biến thể và thay đổi sẽ xảy ra dễ dàng đối với chuyên gia trong lĩnh vực kỹ thuật, người ta không mong muốn hạn chế sáng chế đến những cấu trúc và sự vận hành chính xác đã được thể hiện và được mô tả, và theo đó, tất cả những biến đổi và những sự tương đương phù hợp được dự tính nằm trong phạm vi của sáng chế như được yêu cầu bảo hộ.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Phương pháp để sản xuất các oligome và polyme từ một nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ chứa ít nhất một nguyên tử hydro alpha trên vòng thơm, phương pháp bao gồm:

đưa nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ chứa ít nhất một nguyên tử hydro alpha trên vòng thơm vào một dòng chảy chất khí trơ, trong đó nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ chứa xylem và các monome chứa xylylen;

trộn nitơ oxit với nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ trong dòng chảy chất khí trơ để tạo ra hỗn hợp phản ứng;

đun nóng hỗn hợp phản ứng ở áp suất khí quyển đến nhiệt độ phản ứng để oxy hóa nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ để tạo thành các monome; và

ngưng tụ các monome để tạo ra một hợp chất đầu ra được chọn từ nhóm bao gồm các oligome, và polyme.

2. Phương pháp theo điểm 1, trong đó việc ngưng tụ các monome để tạo ra sản phẩm đầu ra bao gồm việc trộn các monome với một khí trơ lạnh.
3. Phương pháp theo điểm 1 trong đó việc ngưng tụ các monome để tạo ra sản phẩm đầu ra bao gồm:

tăng áp suất từ áp suất khí quyển của hỗn hợp phản ứng bằng cách áp dụng thiết bị đối áp; và

cho chảy sản phẩm phản ứng qua một van giãn nở để tạo ra sự làm lạnh bằng giãn nở và sự ngưng tụ.

4. Phương pháp theo điểm 1 trong đó phương pháp còn bao gồm bước trộn một khí plasma với dòng chảy chất khí trơ nêu trên và nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ và nitơ oxit, tạo thành một hỗn hợp phản ứng chứa khí trơ, nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ, nitơ oxit, và khí plasma.
5. Phương pháp theo điểm 1 trong đó phương pháp này còn bao gồm bước cho hợp chất đầu ra tiếp xúc với một từ trường trong suốt quá trình ngưng tụ.

6. Phương pháp theo điểm 1, trong đó phương pháp này còn bao gồm bước cho hợp chất đầu ra tiếp xúc với một điện trường trong suốt quá trình ngưng tụ.
7. Phương pháp sản xuất oligome, và polyme từ nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ chứa ít nhất một nguyên tử hydro alpha trên vòng thơm, phương pháp này bao gồm:
 - đưa nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ chứa ít nhất một nguyên tử hydro alpha trên vòng thơm vào một dòng chảy chất khí, trong đó nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ chứa xylem và các monome chứa xylylen;
 - đưa oxy đơn nguyên tử vào dòng chất khí với nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ để tạo ra hỗn hợp phản ứng, trong đó việc đưa oxy nguyên tử bao gồm việc trộn khí plasma với dòng chất khí và nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ; và
 - đun nóng hỗn hợp phản ứng ở áp suất khí quyển đến nhiệt độ phản ứng để oxy hóa nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ và kết quả tạo ra các monome; và
 - ngưng tụ các monome để tạo ra hợp chất đầu ra được chọn từ nhóm gồm các oligome và polyme.
8. Phương pháp theo điểm 7 trong đó việc ngưng tụ các monome để tạo ra các hợp chất đầu ra bao gồm việc trộn các monome với một khí trơ lạnh.
9. Phương pháp theo điểm 7, trong đó việc ngưng tụ các monome để tạo ra hợp chất đầu ra bao gồm:
 - tăng áp suất từ áp suất khí quyển của hỗn hợp phản ứng bằng cách áp dụng một thiết bị đối áp; và
 - cho chảy sản phẩm phản ứng qua một van giãn nở để tạo ra sự làm lạnh bằng giãn nở và sự ngưng tụ.
10. Phương pháp theo điểm 7, trong đó phương pháp này còn bao gồm bước cho hợp chất đầu ra tiếp xúc với một từ trường trong suốt quá trình ngưng tụ.
11. Phương pháp theo điểm 7 trong đó phương pháp này còn bao gồm bước cho hợp chất đầu ra tiếp xúc với một điện trường trong suốt quá trình ngưng tụ.

12. Phương pháp sản xuất các hợp chất xyclophan, phương pháp này bao gồm các bước:

tạo ra hỗn hợp của oxy đơn nguyên tử với hợp chất ban đầu chứa khí xylen;

đun nóng oxy đơn nguyên tử và hợp chất ban đầu đến nhiệt độ phản ứng nằm trong khoảng từ 450°C đến 630°C để tạo ra sản phẩm phản ứng được bay hơi chứa [n,n']-xyclophan; và

ngưng tụ sản phẩm phản ứng được bay hơi trên một chất nền.

13. Phương pháp theo điểm 12, trong đó phương pháp này còn bao gồm bước làm lạnh sản phẩm phản ứng được bay hơi để tạo thuận lợi cho việc ngưng tụ sản phẩm phản ứng bay hơi trên chất nền.
14. Phương pháp theo điểm 13, trong đó phương pháp này còn bao gồm bước cho sản phẩm phản ứng tiếp xúc với một trường có hằng số điện môi tăng cao trong khi ngưng tụ sản phẩm phản ứng bay hơi trên chất nền, trường có hằng số điện môi tăng cao nêu trên là một trường từ nhóm bao gồm từ trường và điện trường.
15. Phương pháp theo điểm 7, trong đó nguyên liệu bắt nguồn từ hữu cơ chứa p-xylen và nhiệt độ phản ứng lớn hơn 650°C.
16. Phương pháp theo điểm 7, trong đó hệ số tỉ lượng mol của xylen với oxy đơn nguyên tử là 1:1.

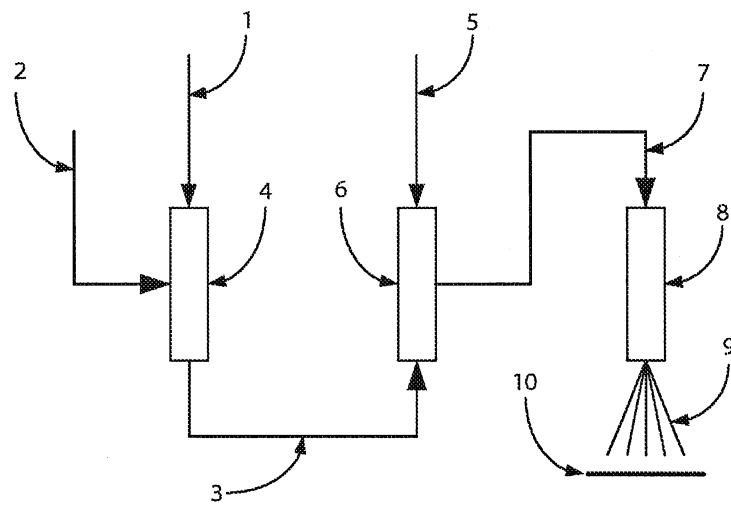


Fig.1

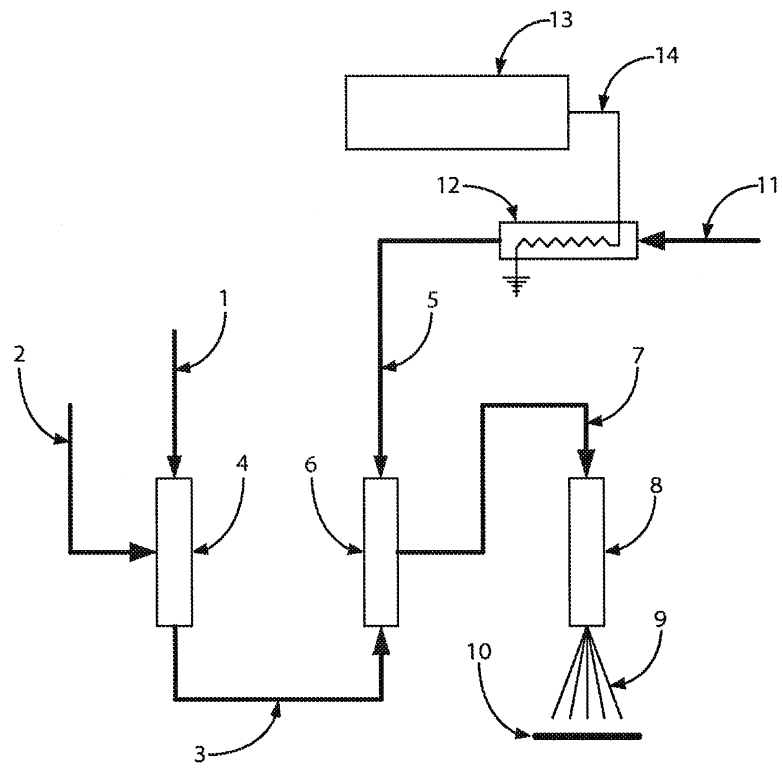


Fig.2

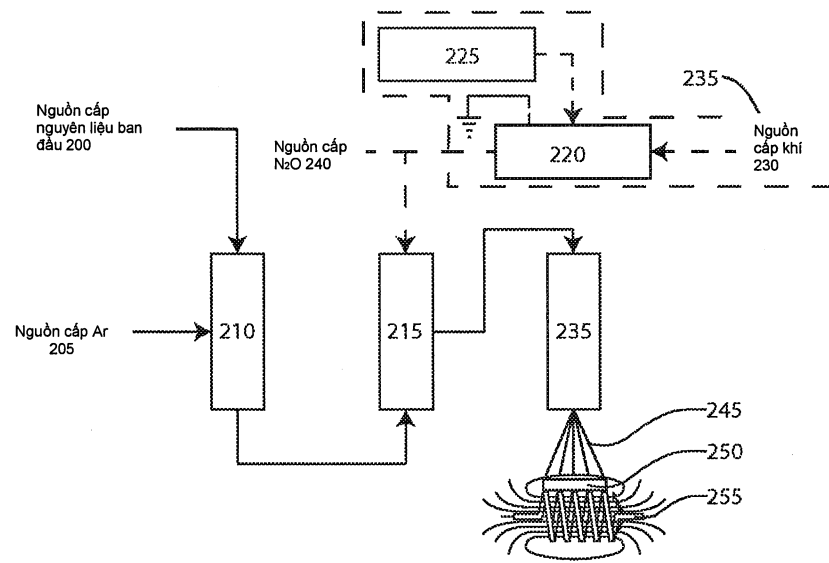


Fig.3